

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-062116

(43)Date of publication of application : 29.02.2000

(51)Int.Cl.

B32B 27/32  
// C09J123/00

(21)Application number : 10-239235

(71)Applicant : JAPAN POLYCHEM CORP

(22)Date of filing : 25.08.1998

(72)Inventor : HASHIMOTO YOSHINORI  
KONO YUJI  
YAMASHITA TAKASHI

## (54) LAMINATED FILM FOR PACKAGING

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a laminated film for packaging having rapid chargeability, excellent sealability and workability.

SOLUTION: The laminated film for packaging is obtained by laminating a sealant layer made of a resin composition containing a linear ethylene copolymer having a density of 0.880 to 0.910 g/cm<sup>3</sup> and an MFR of 1 to 100 g/10 min of a copolymer of an ethylene obtained by a metallocene catalyst and  $\alpha$ -olefin having 3 to 12 carbons, an ethylene resin having a density of 0.910 to 0.925 g/cm<sup>3</sup> and an MFR of 1 to 100 g/10 min, and an adhesive imparting resin and/or wax component, and a base material layer.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2000-62116  
(P2000-62116A)

(43) 公開日 平成12年2月29日 (2000.2.29)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード (参考)
B 3 2 B 27/32	1 0 3	B 3 2 B 27/32	4 F 1 0 0
// C 0 9 J 123/00		C 0 9 J 123/00	4 J 0 4 0

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 11 頁)

(21) 出願番号 特願平10-239235

(22) 出願日 平成10年8月25日 (1998.8.25)

(71) 出願人 596133485

日本ポリケム株式会社  
東京都千代田区有楽町一丁目10番1号

(72) 発明者 橋本 美則

三重県四日市市東邦町1番地 日本ポリケム株式会社四日市技術センター内

(72) 発明者 河野 優二

三重県四日市市東邦町1番地 日本ポリケム株式会社四日市技術センター内

(74) 代理人 100106817

弁理士 鷹野 みふね

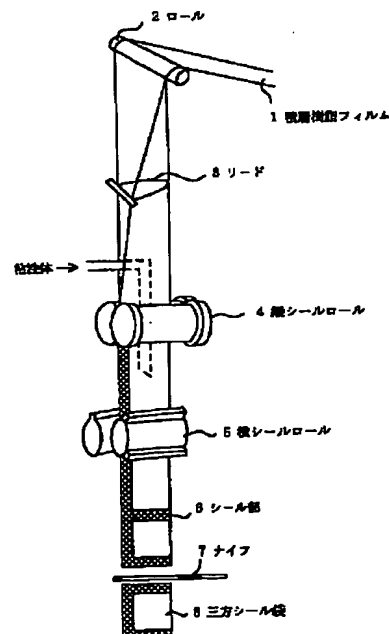
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 包装用積層フィルム

(57) 【要約】

【課題】 高速充填性、シール性、及び加工性に優れた包装用積層フィルムを提供することを課題とする。

【解決手段】 メタロセン触媒により得られるエチレンと炭素数3～12の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体であって密度0.880～0.910 g/cm<sup>3</sup>でMFR 1～100 g/10分の直鎖状エチレン系共重合体 (成分A) と、密度0.910～0.925 g/cm<sup>3</sup>でMFR 1～50 g/10分のエチレン系樹脂 (成分B) と、粘着性付与樹脂 (成分C) 及び/又はワックス成分 (成分D) とを含有する樹脂組成物からなるシーラント層と、基材層とを積層し、包装用積層フィルムを得る。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 少なくとも基材層とシーラント層とから構成され、前記シーラント層が以下に示す成分 (A)、

(B) 及び (C) を含有する樹脂組成物からなることを特徴とする、包装用積層フィルム。

(A) メタロセン化合物を触媒としてエチレンと炭素数 3~12 の  $\alpha$ -オレフィンとを共重合して得られる、密度が 0.880~0.910 g/cm<sup>3</sup>、MFR が 1~100 g/10 分の直鎖状エチレン系共重合体；30~99 重量%

(B) 密度が 0.910~0.940 g/cm<sup>3</sup>、MFR が 1~50 g/10 分のエチレン系樹脂；60~0 重量%

(C) 粘着性付与樹脂；10~1 重量%

【請求項 2】 少なくとも基材層とシーラント層とから構成され、前記シーラント層が以下に示す成分 (A)、

(B) 及び (C) を含有する樹脂組成物からなることを特徴とする、包装用積層フィルム。

(A) メタロセン化合物を触媒としてエチレンと炭素数 3~12 の  $\alpha$ -オレフィンとを共重合して得られる、密度が 0.880~0.910 g/cm<sup>3</sup>、MFR が 1~100 g/10 分の直鎖状エチレン系共重合体；30~99 重量%

(B) 密度が 0.910~0.940 g/cm<sup>3</sup>、MFR が 1~50 g/10 分のエチレン系樹脂；60~0 重量%

(D) ワックス成分；10~1 重量%

【請求項 3】 少なくとも基材層とシーラント層とから構成され、前記シーラント層が以下に示す成分 (A)、

(B) 及び (C) を含有する樹脂組成物からなることを特徴とする、包装用積層フィルム。

(A) メタロセン化合物を触媒としてエチレンと炭素数 3~12 の  $\alpha$ -オレフィンとを共重合して得られる、密度が 0.880~0.910 g/cm<sup>3</sup>、MFR が 1~100 g/10 分の直鎖状エチレン系共重合体；20~98 重量%

(B) 密度が 0.910~0.940 g/cm<sup>3</sup>、MFR が 1~50 g/10 分のエチレン系樹脂；60~0 重量%

(C) 粘着性付与樹脂；10~1 重量%

(D) ワックス成分；10~1 重量%

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、包装用積層フィルムに関する。詳しくは、本発明は加工性、シール性、及び高速充填性に優れた包装用積層フィルムに関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来より、基材に必要なに応じて種々の中間層を積層させ、さらにその上にシーラント層を積層させて得られる積層フィルムが、包装材として使用されて

きた。かかる包装材に収容される内容物は多岐にわたり、例えば液体及び粘体、並びに不溶物質として繊維、粉体等の固形状のものを含んだ液体、粘体等がある。

【0003】このような積層フィルムは、通常シーラント層においてヒートシールされる。しかしながら、シーラント層の材質として直鎖状低密度ポリエチレンを用いた従来の積層フィルムでは、内容物の充填時にシール部に該内容物が夾雑物としてシールされ、シール強度の低下、異物介在による液漏れ等が発生する場合があった。したがってその結果、不良率の発生が多く、また充填速度を高くすることができず、15 m/分程度が限界であった。

【0004】また、従来のものでは、積層フィルムの製造時にロールからのフィルムの離脱性（離ロール性）が悪いため、加工速度が上げられず生産性が向上しないという問題点もあった。

【0005】よって、離ロール性が良好で加工性に優れ、しかもシール時に内容物がシール部に夾雑シールされても高速充填が可能で不良率が少ない、夾雑物シール性に優れた包装用積層フィルムの開発が望まれていた。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、高速充填性、シール性、及び加工性に優れた包装用積層フィルムを提供することを課題とする。

## 【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、このような状況に鑑み鋭意研究を重ねた結果、シーラント層の材質として特定の組成を有する樹脂組成物を用いることにより、上記課題を解決し得ることを見出し、本発明を完成した。

【0008】すなわち、本発明は、少なくとも基材層とシーラント層とから構成され、前記シーラント層が以下に示す成分 (A)、(B) 及び (C) を含有する樹脂組成物（以下、「組成物 I」とする）からなることを特徴とする、包装用積層フィルムを提供する。

【0009】(A) メタロセン化合物を触媒としてエチレンと炭素数 3~12 の  $\alpha$ -オレフィンとを共重合して得られる、密度が 0.880~0.910 g/cm<sup>3</sup>、MFR が 1~100 g/10 分の直鎖状エチレン系共重合体；30~99 重量%

(B) 密度が 0.910~0.940 g/cm<sup>3</sup>、MFR が 1~50 g/10 分のエチレン系樹脂；60~0 重量%

(C) 粘着性付与樹脂；10~1 重量%

【0010】また、本発明は、少なくとも基材層とシーラント層とから構成され、前記シーラント層が以下に示す成分 (A)、(B) 及び (C) を含有する樹脂組成物（以下、「組成物 II」とする）からなることを特徴とする包装用積層フィルムを提供する。

【0011】(A) メタロセン化合物を触媒としてエチ

レンと炭素数3～12の $\alpha$ -オレフィンとを共重合して得られる、密度が0.880～0.910 g/cm<sup>3</sup>、MFRが1～100 g/10分の直鎖状エチレン系共重合体；30～99重量%

(B) 密度が0.910～0.940 g/cm<sup>3</sup>、MFRが1～50 g/10分のエチレン系樹脂；60～0重量%

(D) ワックス成分；10～1重量%

【0012】また、本発明は、少なくとも基材層とシーラント層とから構成され、前記シーラント層が以下に示す成分(A)、(B)及び(C)を含有する樹脂組成物（以下、「組成物III」とする）からなることを特徴とする包装用積層フィルムを提供する。

【0013】(A) メタロセン化合物を触媒としてエチレンと炭素数3～12の $\alpha$ -オレフィンとを共重合して得られる、密度が0.880～0.910 g/cm<sup>3</sup>、MFRが1～100 g/10分の直鎖状エチレン系共重合体；20～98重量%

(B) 密度が0.910～0.940 g/cm<sup>3</sup>、MFRが1～50 g/10分のエチレン系樹脂；60～0重量%

(C) 粘着性付与樹脂；10～1重量%

(D) ワックス成分；10～1重量%

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態について説明する。

【0014】本発明の積層フィルムは、少なくとも基材層とシーラント層とから構成されている。

【0015】(1) 基材層

本発明の積層フィルムの基材層としては、包装用フィルムの基材として用いられるものであれば特に限定されず、種々のものを用いることができる。例えば、ナイロン6、ナイロン66等のポリアミド樹脂、ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル樹脂、ポリプロピレン等のポリオレフィン樹脂、エチレン・酢酸ビニル共重合体の酸化物、ポリビニルアルコール、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン等の合成樹脂、金属箔、金属蒸着フィルム、金属酸化物による蒸着フィルム等の単一基材またはこれら複合基材が挙げられる。

【0016】金属箔は、特に限定されないが、厚さ5～50  $\mu$ m程度のアルミニウム箔、錫箔、鉛箔、亜鉛メッキした薄層鋼板、電気分解法によりイオン化金属を薄膜にしたもの、アイアンフォイル等が用いられる。また、金属蒸着フィルムについても、特に限定されないが、蒸着金属としてはアルミニウム、亜鉛、チタン、ニッケル、鉄、モリブデン、タングステン等が、また厚みは0.01～0.2  $\mu$ m程度が、通常好ましく用いられる。蒸着の方法も特に限定されず、真空蒸着法、イオンプレーティング法、スパッタリング法等周知の方法が用\*



【0026】【ここで、Q<sup>1</sup>は二つの共役五員環配位子

\*いられる。

【0017】さらに、金属酸化物の蒸着については、一酸化ケイ素、ガラス、アルミナ、酸化マグネシウム、蛍石、酸化錫、フッ化セレン等が用いられ、これら酸化物には、微量の金属や、他の金属酸化物、金属水酸化物が含まれていてもよい。

【0018】薄膜形成は、フィルムの少なくとも片面に、上記の種々の蒸着方法を適用することによっても行うことができる。薄膜の厚みは、通常、12～40  $\mu$ m程度である。また、フィルムとしては特に制限はなく、延伸又は未延伸のポリエステルフィルム、ポリプロピレンフィルム、ポリアミドフィルム等の透明フィルムが挙げられる。

【0019】(2) シーラント層

本発明の積層フィルムのシーラント層は、以下に述べる成分(A)を必須成分とし、必要に応じて成分(B)、(C)、(D)を含む樹脂組成物からなる。

【0020】(i) 成分(A)

成分(A)は、メタロセン化合物を触媒としてエチレンと炭素数3～12の $\alpha$ -オレフィンとを共重合して得られる直鎖状エチレン系共重合体である。

【0021】前記直鎖状エチレン系共重合体のモノマーとして用いられる炭素数3～12の $\alpha$ -オレフィンとしては、プロピレン、ブテン-1、ペンテン-1、ヘキセン-1、オクテン-1、ヘプテン-1、4-メチルペンテン-1、4-メチルヘキセン-1、4,4-ジメチルペンテン-1等を挙げることができる。また、モノマーは1種類に限られず、ターポリマーのように2種類以上の $\alpha$ -オレフィンを用いて多元系共重合体としてもよい。特に好ましいものとしては、エチレン・ヘキセン-1共重合体、エチレン・オクテン-1共重合体等を挙げることができる。

【0022】前記直鎖状エチレン系共重合体の全構成単位中におけるエチレンと $\alpha$ -オレフィンとの割合は、特に限定されないが、好ましくはエチレンが72～88重量%、 $\alpha$ -オレフィンが12～28重量%である。なお、これらの共重合比は<sup>13</sup>C-NMRによって測定されたものである。

【0023】前記直鎖状エチレン系共重合体の製造に触媒として用いられるメタロセン化合物（以下、単に「メタロセン触媒」ともいう）は、具体的には、以下に示す成分a、成分b、及び必要に応じて用いられる成分cからなるものが挙げられる。

【0024】〔成分a〕成分aは、下記一般式(I)で表される化合物である。

【0025】

〔化1〕

を架橋する結合性基であり、炭素数1～20の2価の炭

化水素基、炭素数1～20の炭化水素基を有するシリレン基、又は炭素数1～20の炭化水素基を有するゲルミレン基を示す。Meはジルコニウム又はハフニウムを、 $X^1$ 及び $Y^1$ は、それぞれ独立して、水素、ハロゲン基、炭素数1～20の炭化水素基、炭素数1～20のアルコキシ基、炭素数1～20のアルキルアミド基、トリフルオロメタンスルホン酸基、炭素数1～20のリン含有炭化水素基又は炭素数1～20のケイ素含有炭化水素基を示す。 $R^1$ 及び $R^2$ は、それぞれ独立して、炭素数1～20の炭化水素基、ハロゲン基、アルコキシ基、ケイ素含有炭化水素基、リン含有炭化水素基、窒素含有炭化水素基又はホウ素含有炭化水素基を示す。

【0027】また、隣接する2個の $R^1$ 又は $R^2$ がそれぞれ結合して環を形成していてもよい。 $a$ 及び $b$ は各々 $0 \leq a \leq 4$ 、 $0 \leq b \leq 4$ を満足する整数である。但し、 $R^1$ 及び $R^2$ を有する2個の五員環配位子は基 $Q^1$ を介しての相対位置の観点において、Meを含む平面に関して非対称である。]

【0028】 $Q^1$ は、上記したように、二つの共役五員環配位子を架橋する結合性基であり、以下の(イ)、(ロ)及び(ハ)で示される基から選ばれる。

(イ)炭素数1～20、好ましくは1～6の2価の炭化水素基、さらに詳しくは、例えばアルキレン基、シクロアルキレン基、アリーレン等の不飽和炭化水素基、

(ロ)炭素数1～20、好ましくは1～12の炭化水素基を有するシリレン基、

(ハ)炭素数1～20、好ましくは1～12の炭化水素基を有するゲルミレン基。

【0029】なお、2価の $Q^1$ 基の両結合手間の距離は、その炭素数の如何に関わらず、 $Q^1$ が鎖状の場合に4原子程度以下、好ましくは3原子以下であることが、 $Q^1$ が環状基を有するものである場合は当該環状基+2原子程度以下、就中当該環状基のみであることが、それぞれ好ましい。

【0030】従って、アルキレンの場合はエチレン及びイソプロピリデン（両結合手間の距離は2原子及び1原子）が、シクロアルキレン基の場合はシクロヘキシレン基（結合手間の距離がシクロヘキシレン基のみ）が、アルキルシリレンの場合は、ジメチルシリレン基（結合手間の距離が1原子）がそれぞれ好ましい。

【0031】Meは、ジルコニウム又はハフニウムである。 $X^1$ 及び $Y^1$ は、それぞれ独立に、すなわち相互に同一でも異なっていてよく、以下の(ニ)～(ル)で示される基から選ばれる。

【0032】(ニ)水素

(ホ)ハロゲン（フッ素、塩素、臭素、ヨウ素、好ましくは塩素）

(ヘ)炭素数1～20、好ましくは炭素数1～12の炭化水素基

(ト)炭素数1～20、好ましくは炭素数1～12のア

ルコキシ基

(チ)炭素数1～20、好ましくは炭素数1～12のアルキルアミド基

(リ)炭素数1～20、好ましくは炭素数1～12のリン含有炭化水素基

(ヌ)炭素数1～20、好ましくは炭素数1～12のケイ素含有炭化水素基

(ル)トリフルオロメタンスルホン酸基

【0033】また、 $R^1$ 及び $R^2$ は、それぞれ独立して、炭素数1～20の炭化水素基、ハロゲン基、アルコキシ基、ケイ素含有炭化水素基、リン含有炭化水素基、窒素含有炭化水素基又はホウ素含有炭化水素基を示す。また、隣接する2個の $R^1$ 又は2個の $R^2$ がそれぞれ結合して環を形成していてもよい。 $a$ 及び $b$ はそれぞれ $0 \leq a \leq 4$ 、 $0 \leq b \leq 4$ を満足する整数である。

【0034】具体的な例としては、特開平8-208733号公報に例示した化合物を挙げることができる。例えばジメチルシリレンビス（2，4-ジメチルインデニル）ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス（2-メチル-4-イソプロピルインデニル）ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス（2-メチル-4-フェニルインデニル）ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス（2-メチル-4，5-ベンゾインデニル）ジルコニウムジクロリド等を挙げることができる。これらの中でもジメチルシリレンビス（2-メチル-4，5-ベンゾインデニル）ジルコニウムジクロリド、又はジメチルシリレンビス（2-メチル-4-フェニルインデニル）ジルコニウムジクロリドを用いることが好ましい。

【0035】[成分b]成分bは、アルミニウムオキシ化合物（成分b-1）、ルイス酸（成分b-2）、及び、成分aと反応して成分aをカチオンに変換することが可能なイオン性化合物（成分b-3）のうちから選ばれる化合物である。

【0036】ここで、ルイス酸のあるものは、「成分aと反応して成分aをカチオンに変換することが可能なイオン性化合物」として捉えることができる。従って、「ルイス酸」及び「成分aと反応して成分aをカチオンに変換することが可能なイオン性化合物」の両者に属する化合物は、いずれか一方に属するものと解釈するものとする。

【0037】成分b-1、成分b-2、成分b-3についての具体的な化合物や製造法については、特開平6-239914号公報及び特開平8-208733号公報に例示された化合物や製造法を挙げることができる。

【0038】例えば、成分b-1としては、1種類のトリアルキルアルミニウムと水から得られるメチルアルモキサン、エチルアルモキサン、ブチルアルモキサン、イソブチルアルモキサン、2種類のトリアルキルアルミニウムと水から得られるメチルエチルアルモキサン、メチ

ルブチルアルモキシサン、メチルイソブチルアルモキシサン、また、アルキルボロン酸としては、メチルボロン酸、エチルボロン酸、ブチルボロン酸、イソブチルボロン酸等を挙げることができる。

【0039】また、成分b-3としては、トリフェニルカルボニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、さらに成分b-2としては、トリフェニルホウ素、トリス（3，5-ジフルオロフェニル）ホウ素、トリス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、N，N-ジメチルアニリニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレートをを用いることが好ましい。

【0040】〔成分c〕成分cは有機アルミニウム化合物であり、必要に応じて用いられる。好ましいものとしては、下記一般式（II）で表される化合物が挙げられ、これらの化合物は単独で又は複数種を組み合わせ使用することができる。

【0041】

〔化2〕 $(A_1R'_nX_{3-n})_m \cdots (II)$

【0042】〔式中、R'は 炭素数1~20、好ましくは1~10のアルキル基を示し、Xはハロゲン、水素、アルコキシ基、又はアミノ基を示す。nは1~3、好ましくは2~3の整数、mは1~2、好ましくは1である。〕

【0043】具体的な化合物としては、トリメチルアルミニウム、トリエチルアルミニウム、トリノルマルプロピルアルミニウム、トリノルマルブチルアルミニウム、トリイソブチルアルミニウム、トリノルマルヘキシルアルミニウム、トリノルマルオクチルアルミニウム、トリノルマルデシルアルミニウム、ジエチルアルミニウムモノクロライド、エチルアルミニウムセスキクロライド、ジエチルアルミニウムヒドリド、ジエチルアルミニウムエトキシド、ジエチルアルミニウムジメチルアミド、ジイソブチルアルミニウムヒドリド、ジイソブチルアルミニウムクロライド等を挙げることができる。これらの中で、好ましくは、m=1、n=3のトリアルキルアルミニウム及びジアルキルアルミニウムヒドリドである。さらに好ましくは、R'が炭素数1~8であるトリアルキルアルミニウムである。

【0044】〔触媒の調製〕本発明の直鎖状エチレン系共重合体の製造に用いられるメタロセン触媒は、前記成分a、成分b及び必要に応じて用いられる成分cを、重合槽内であるいは重合槽外で、重合させるべきモノマーの存在下あるいは不存在下に接触させることにより調製することができる。

【0045】上記メタロセン触媒は微粒子状の固体を担体として用い、固体状触媒として使用することも可能である。微粒子状の固体としては、無機化合物としてはシリカ、アルミナ等の無機の多孔質酸化物、有機化合物としてはエチレン、プロピレン、1-ブテン等の $\alpha$ -オレフィン、又はスチレンを主成分として生成される重合体

もしくは共重合体等を挙げることができる。

【0046】上記メタロセン触媒は、オレフィンの存在下で予備重合を行ったものであってもよい。予備重合に用いられるオレフィンとしては、エチレン、プロピレン、1-ブテン、3-メチル-1-ブテン、スチレン、ジビニルベンゼン等が用いられるが、これらと他のオレフィンの混合物であってもよい。

【0047】上記メタロセン触媒の調製において使用される成分a、成分b、成分cの割合は任意であるが、一般的に成分bとして何を選択するかで好ましい使用量の範囲が異なる。

【0048】成分bとして成分b-1を使用する場合、成分b-1のアルミニウムオキシ化合物中のアルミニウム原子と成分a中の遷移金属の原子比（Al/Me）は1~100000、さらに10~10000、特に50~5000の範囲内とするのが好ましい。

【0049】成分bとして成分b-2のルイス酸や成分b-3のイオン性化合物を使用する場合は、成分a中の遷移金属と成分b-2又は成分b-3のモル比が0.1~1000、さらに0.5~100、特に1~50の範囲で使用するのが好ましい。

【0050】成分cの有機アルミニウム化合物を使用する場合は、その使用量は、成分aに対するモル比で $10^{-5}$ 以下、さらに $10^{-4}$ 以下、特に $10^{-3}$ 以下の範囲とするのが好ましい。

【0051】〔重合〕上記メタロセン触媒を用いた直鎖状エチレン系共重合体の製造は、該触媒の存在下にエチレンと炭素数3~12の $\alpha$ -オレフィンとを混合接触させることにより行われる。反応系中の各モノマーの量比は経時的に一定である必要はなく、各モノマーを一定の混合比で供給することも便利であるし、供給するモノマーの混合比を経時的に変化させることも可能である。また、共重合反応比を考慮してモノマーのいずれかを分割添加することもできる。

【0052】重合様式は、触媒成分と各モノマーが効率よく接触する方法であれば、あらゆる様式を採用することができる。具体的には、不活性溶媒を用いるスラリー法、バルク法、溶液重合法あるいは実質的に液体溶媒を用いず各モノマーをガス状に保つ気相法等を採用することができる。

【0053】また、連続重合、回分式重合にも適用される。スラリー重合の場合には、重合溶媒としてヘキサン、ヘプタン、ペンタン、シクロヘキサン、ベンゼン、トルエン等の飽和脂肪族又は芳香族炭化水素の単独あるいは混合物を用いることができる。

【0054】重合時条件としては重合温度が-78℃~160℃、好ましくは0℃~150℃であり、そのときの分子量調節剤として補助的に水素を用いることができる。また、重合圧力は0~90 kg/cm<sup>2</sup>・G、好ましくは0~60 kg/cm<sup>2</sup>・G、特に好ましくは1~

50 kg/cm<sup>3</sup>・Gが適当である。

【0055】このようにして得られる本発明の直鎖状エチレン系共重合体の密度は0.880~0.910 g/cm<sup>3</sup>、好ましくは0.880~0.900 g/cm<sup>3</sup>である。密度が上記範囲未満ではブロッキング性の点で好ましくない。また、密度が上記範囲を超えると夾雑物シール性の点で好ましくない。

【0056】また、前記直鎖状エチレン系共重合体のMFR（メルトフローレート；溶融流量）は1~100 g/10分、好ましくは5~50 g/10分である。MFRが上記範囲未満では押出時にモーターの負荷がかかりすぎるので好ましくない。また、MFRが上記範囲を超えると加工時のネックインが大きくなるので好ましくない。なお、この場合のMFRはJIS-K7210（190℃、2.16 kg荷重）に準拠して測定した値である。

【0057】(ii) 成分(B)

本発明の成分(B)はエチレン系樹脂であり、その密度は0.910~0.940 g/cm<sup>3</sup>、好ましくは0.911~0.921 g/cm<sup>3</sup>である。密度が上記範囲

を超えるとシール性の点で好ましくない。【0058】また、前記エチレン系樹脂のMFRは1~50 g/10分、好ましくは1~10 g/10分である。MFRが上記範囲未満では押出時にモーターの負荷がかかりすぎるので好ましくない。また、MFRが上記範囲を超えると加工時のネックインが大きくなるので好ましくない。なお、このMFRは成分(A)の場合と同様に、JIS-K7210（190℃、2.16 kg荷重）に準拠して測定した値である。

【0059】このようなエチレン系樹脂としては、高圧法低密度ポリエチレン、直鎖状低密度エチレン共重合体、エチレン・酢酸ビニル共重合体等が挙げられる。

【0060】(iii) 成分(C)

本発明の成分(C)は、粘着性付与樹脂である。粘着性付与樹脂とは、樹脂組成物に粘着性（接着性）を付与し得る樹脂一般をいう。本発明で用いられる粘着性付与樹脂としては、ロジン系、テルペン系、石油樹脂系、クロマン樹脂系のもの等が挙げられる。

【0061】ロジン系の粘着性付与樹脂としては、ガムロジン、ウッドロジン、重合ロジン、不均化ロジン、水添ロジン、二量ロジン等が挙げられ、さらにこれら各種ロジンとベンタエリスリトール、グリセリン、ジエチレングリコール等とのエステル、ロジンフェノール樹脂なども例示される。

【0062】テルペン系の粘着性付与樹脂としては、テルペン樹脂、テルペンとスチレンとの共重合体、テルペンと $\alpha$ -メチルスチレンとの共重合体、テルペンとフェノールとの共重合体及びこれらの水添物などが例示される。

【0063】石油樹脂系の粘着性付与樹脂としては、脂

肪族石油樹脂（イソブチレン、ブタジエン、1,3-ペンタジエン、イソプレン、ビベリジンなどのC<sub>4</sub>~C<sub>8</sub>モノ又はジオレフィンを主成分とする重合体等）、脂環族石油樹脂（スベントC<sub>4</sub>~C<sub>8</sub>留分中のジエン成分を環化2量体化後重合させた樹脂、芳香族系炭化水素樹脂を核内水添した樹脂等）、芳香族石油樹脂（ビニルトルエン、インデン、 $\alpha$ -メチルスチレンなどのC<sub>9</sub>~C<sub>10</sub>のビニル芳香族炭化水素を主成分とした樹脂等）、脂肪族-芳香族共重合体等の石油樹脂及びこれらの水添物などが例示される。

【0064】クロマン樹脂系の粘着性付与樹脂としては、クロマン樹脂、クロマン-インデン樹脂等が挙げられる。また、上記以外に、キシレン樹脂、スチレン系樹脂等も粘着性付与樹脂として使用することができる。

【0065】上記粘着性付与樹脂は各々単独で用いても良く、また種類や軟化点の異なるものを2種以上併用してもよい。これらの粘着性付与樹脂は、液状ロジン樹脂、液状テルペン樹脂等の液状の粘着樹脂であってもよい。さらに、上記粘着性付与樹脂は無水マレイン酸、マレイン酸エステルなどでグラフト変性したものであってもよい。

【0066】上記粘着性付与樹脂としては、環球法軟化点（測定法：J A 1-7-1991に準拠）が30~160℃のものが好ましく、より好ましくは環球法軟化点が60~140℃のものである。また、常温で液状のものは単独で使用する と 接着剤の凝集力を低くしすぎる場合があるが、常温で固形のもの と 併用することにより使用することができる。

【0067】(iv) 成分(D)

本発明の成分(D)は、ワックス成分である。ワックス成分としては、例えば、パラフィンワックス、マイクロクリスタリンワックス、フィッシュアトロブシュワックス、ポリエチレンワックス、ポリプロピレンワックス、及びこれらを酸化分解して得られる酸化ワックス、並びに前記ワックス類にマレイン酸、無水マレイン酸、フマル酸、アクリル酸、メタクリル酸等の不飽和（無水）カルボン酸をグラフトした酸変性ワックスなどが挙げられる。上記各種ワックス成分は、各々単独で用いても良く、また種類等の異なるものを2種以上併用してもよい。

【0068】なお、極性基含有ワックスを用いる場合は、上記粘着性付与樹脂又は上記ワックス成分のうち極性基を含まないものと混合して用いるのが好ましい。その場合、その混合比は、粘着性付与樹脂又は極性基を含まないワックス成分に対する重量比で50重量%以下であることが好ましい。混合比が50重量%より多いと、樹脂組成物としたときに熱安定性や接着強度が低下する傾向にあるので好ましくない。

【0069】(v) 樹脂組成物

本発明で用いられる樹脂組成物としては、成分(A)、

(B)、及び(C)からなる組成物I、成分(A)、  
(B)、及び(D)からなる組成物II、成分(A)、  
(B)、(C)及び(D)からなる組成物IIIがある。

【0070】組成物I：本発明の組成物Iは、上記成分(A)を30～99重量%、好ましくは55～94重量%含有し、成分(B)を60～0重量%、好ましくは40～5重量%含有し、成分(C)を10～1重量%、好ましくは5～1重量%含有するものである。

【0071】成分(A)の含有量が30重量%未満では、シール性の点で好ましくなく、99重量%を超えると加工性の点で好ましくない。成分(B)は任意成分であり、樹脂組成物に必ずしも含まれていなくてもよいが、該成分(B)を配合することによって加工性が向上し、特にネックインが小さくなるという利点が得られる。一方、この含有量が60重量%を超えるとシール性の点で好ましくない。

【0072】成分(C)である粘着性付与樹脂の含有量は、10重量%を超えると樹脂組成物全体の熔融粘度が小さくなり、押出ラミネート成形における加工性が悪化し、さらに樹脂組成物中の熱安定性、耐ブロッキング性が悪化したり、袋での耐圧強度が低くなるので好ましくない。また1重量%より少ないと夾雑物シール性の点から好ましくない。

【0073】組成物II：本発明の組成物IIは、上記成分(A)を30～99重量%、好ましくは55～94重量%含有し、成分(B)を60～0重量%、好ましくは40～5重量%含有し、成分(D)を10～1重量%、好ましくは5～1重量%含有するものである。

【0074】成分(A)の含有量が30重量%未満では、シール性の点で好ましくなく、99重量%を超えると加工性の点で好ましくない。成分(B)は組成物Iの場合と同様に任意成分であるが、該成分(B)を配合することによって加工性が向上し、特にネックインが小さくなるという利点が得られる。一方、この含有量が60重量%を超えるとシール性の点で好ましくない。

【0075】成分(D)であるワックス成分の含有量は、10重量%を超えると、樹脂組成物全体の熔融粘度が小さくなり、押出ラミネート成形における加工性が悪化し、さらに樹脂組成物中の熱安定性、耐ブロッキング性が悪化したり、袋での耐圧強度が低くなるので好ましくない。また1重量%より少ないと夾雑物シール性の点から好ましくない。

【0076】組成物III：本発明の組成物Iは、上記成分(A)を20～98重量%、好ましくは50～93重量%含有し、成分(B)を60～0重量%、好ましくは40～5重量%含有し、成分(C)を10～1重量%、好ましくは5～1重量%含有し、成分(D)を10～1重量%、好ましくは5～1重量%含有するものである。

【0077】成分(A)の含有量が20重量%未満では、シール性の点で好ましくなく、98重量%を超

と加工性の点で好ましくない。成分(B)は任意成分であるが、該成分(B)を配合することによって加工性が向上し、特にネックインが小さくなるという利点が得られる。一方、この含有量が60重量%を超えるとシール性の点で好ましくない。

【0078】成分(C)及び成分(D)の含有量は、各々10重量%を超えると樹脂組成物全体の熔融粘度が小さくなり、押出ラミネート成形における加工性が悪化し、さらに樹脂組成物中の熱安定性、耐ブロッキング性が悪化したり、袋の耐圧強度が低下するので好ましくない。また1重量%より少ないと夾雑物シール性の点から好ましくない。

【0079】その他の添加成分：本発明の樹脂組成物(組成物I～III)には、上記成分(A)～(D)に加え、本発明の効果を著しく損なわない範囲において、通常用いられる樹脂添加剤等を付加的成分として添加することができる。該付加的成分としては、通常のポリオレフィン樹脂用配合剤として使用される核剤、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤、硫黄系酸化防止剤、中和剤、光安定剤、紫外線吸収剤、滑剤、帯電防止剤、金属不活性剤、充填剤、抗菌防黴剤、蛍光増白剤等を挙げることができる。これらの付加的成分の配合量は、樹脂組成物全体に対し、一般に0.001～1重量%、より好ましくは0.01～0.5重量%である。

【0080】(vi)樹脂組成物の調製

本発明で用いられる樹脂組成物(組成物I～III)は、通常、上記成分(A)～(D)のうちの必要な成分に、さらに他の付加的成分を必要に応じて配合し、混合、熔融、混練することにより製造することができる。

【0081】混合、熔融、混練は、通常、ヘンシェルミキサー、スーパーミキサー、Vブレンダー、タンブラーミキサー、リボンブレンダー、パンバリーミキサー、ニーダーブレンダー、一軸又は二軸の混練押出機等にて実施することができる、これらの中でも一軸又は二軸の混練押出機により混合或いは熔融混練を行うことが好ましい。

【0082】(3)中間層

本発明の積層フィルムには、上述した基材層とシーラント層との間に、さらに必要に応じて種々の中間層を設けることができる。中間層の材質としては、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体、高圧法低密度ポリエチレン等を挙げることができる。

【0083】またそのほかに、積層フィルムに各種の機能を付与するために通常設けられる種々の層を必要に応じて設けることができる。これらの例としては、接着層、ガスバリアー層等を挙げることができる。

【0084】(4)積層フィルム

本発明の積層フィルムは、上記基材層及びシーラント層並びに必要に応じて設けられる中間層を構成層として有する。



【0085】積層フィルム全体の厚み及び各層の厚み並びに厚み比については特に制限はなく、内容物や用途等に応じて適宜決定すればよいが、具体的には、積層フィルム全体の厚みは40～120 $\mu$ m、基材層の厚みは10～40 $\mu$ m、シーラント層の厚みは10～40 $\mu$ m程度が好ましい。中間層を設ける場合は、該中間層の厚みは20～40 $\mu$ m程度が好ましい。

【0086】積層フィルムの製造方法については特に制限はなく、例えば従来の多層フィルムの成形方法に従って、各層をあらかじめ別々にフィルム状に形成してその後それらを接着させて積層する方法、押出法によって各層の形成および積層を同一工程で行う方法等が挙げられる。

【0087】各層を別個にフィルム状に形成した後接着させる方法の場合、フィルムの製造は、空冷インフレーション成形法、空冷2段冷却インフレーション成形法、Tダイフィルム成形法、水冷インフレーション成形法等を採用することができる。

【0088】また、押出法の場合は、押出ラミネート法、ドライラミネート法、サンドイッチラミネート法、共押出法（接着層を設けない共押出、接着層を設ける共押出、接着樹脂を配合する共押出等を含む）等の方法がある。

【0089】また、積層の際は、フィルム表面の接着性をよくするために、予め基材上にコロナ放電処理、オゾン処理、フレーム処理等の表面処理を行うことができる。さらに、接着性増強等のために、予め基材上にアンカーコート剤を塗布してから積層するのが好ましい。アンカーコート剤としては、イソシアネート系、ポリエチレンイミン系、ポリブタジエン系等のものが挙げられる。

【0090】このようにして得られる本発明の積層フィルムは、種々の包装材、例えば食品包装材、医療用包装材、エンジンオイルなどの工業材料包装材等として用いることができる。特に、繊維、粉体等の固形状の不溶物を含む液体、粘体等の流体を内容物として収容するための包装材として好適に用いられる。

#### 【0091】

【実施例】以下に、実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例にのみ限定されるものではない。なお、以下の実施例及び比較例における各物性の測定及び評価は以下に示す方法によって実施した。

#### 【0092】(1) MFRの測定

JIS-K7210(190℃、2.16kg荷重)に準拠して測定した。

#### 【0093】(2) 積層フィルムの加工性評価

積層フィルム成形時の加工性を、以下の基準で離ロール性を判定することにより評価した。

○：離ロール性が良好。

△：離ロール性が若干悪い。

×：離ロール性が悪く、加工速度が上げられず生産に支障を与える。

#### 【0094】(3) 積層フィルムへの充填方法

図1に示す公知のダイロール方式の自動充填包装機を用いて、積層フィルムより三方シール袋を形成した。すなわち、積層フィルム1のシーラント層(C)側を上側に、基材(A)が下側になるように積層フィルム1をガイドロール2に供給し、リード3により積層フィルム1を二つ折りした。この二つ折りした積層フィルム間に内容物を充填し、縦シールロール4で二つ折りした積層フィルムの左端の縦方向をヒートシールした。次いで、横シールした後、内容物を一定量充填されたら横シールロール5で横方向にヒートシールし、前記横方向のヒートシール部6をナイフ7でカッティングし、内容物が充填された三方シール袋8を製造した。

#### 【0095】(4) 充填速度及びシール性の評価

粘性体自動充填包装機(小松製作所製、MODEL・K MW313)を用いて、次の条件で粘性体を充填し、充填速度、袋の耐圧強度、及び経時液漏れ性を評価した。

#### 【0096】[充填条件]

シール温度：(縦)210℃、(横)1;160℃、2;160℃

包装形態：三方シール

袋寸法：(内寸)縦47mm×横24mm、(外寸)縦60mm×横32.5mm

充填物：おろししょうが(長繊維入り)

充填量：約6cc

【0097】[最高充填速度の判定基準] 種々の充填速度で充填を行い、充填後の袋の特に縦シール部に於いて、以下に示す不具合の少なくともいづれかが発生したときの充填速度を、その積層フィルムの最高充填速度とした。

(a) シワ及び気泡がある。

(b) 一部剥離(シール不良)がある。

(c) 波がある。

(d) 液漏れがある。

【0098】[耐圧強度の判定基準] 前記基準で決定された最高充填速度で充填した袋を、耐圧テスター(小松製作所製)にて100kg荷重で3分間保持し、以下に示す3段階で評価した。

○：液漏れ、破袋、及びシール部剥離なし。

△：シール部剥離発生。

×：液漏れ、破袋あり。

【0099】[経時液漏れ性の判定基準] 最高充填速度で充填した袋を500個作成した袋をポリエチレン袋に入れ、ヒートシールにて密閉し3日間放置した後、開封して液漏れ袋の個数を計測し、経時による液漏れを評価した。

50 【0100】

【実施例1】厚さ15 $\mu$ mの二軸延伸ナイロンフィルム(ONY)基材に、イソシアネート系アンカーコート剤(日本曹達(株)製、チタボンドT-120)溶液を塗布し、温度80℃で3秒間乾燥した面に、共押出ラミネーターのTダイから、以下に示す中間層とシーラント層とを共押出し、基材層/中間層/シーラント層の3層からなる積層フィルムを成形した。

【0101】(中間層)触媒としてメタロセン化合物を用いて得られたエチレン・ヘキセン-1共重合体(日本ポリケム(株)製、商品名「カーネルKC581」(カーネルは登録商標)。MFR:11g/10分、密度:0.920g/cm<sup>3</sup>)を樹脂温度290℃、幅560mm、厚み30 $\mu$ mとなるように押出した。

【0102】(シーラント層)以下に示す成分(A)、(B)及び(C)の混合物を二軸押出機にて熔融混練し、ペレット化して樹脂組成物を得た。得られた樹脂組成物を樹脂温度280℃、幅560mm、厚み15 $\mu$ mとなるように押出した。

【0103】(A)直鎖状エチレン系共重合体として、メタロセン触媒を用いて得られたエチレン・ブテン-1共重合体(MFR:32g/10分、密度:0.88g/cm<sup>3</sup>、ブテン含量:23重量%):75重量%

(B)エチレン系樹脂として、低密度ポリエチレン「ノバテックLC600A」(日本ポリケム(株)製、MFR:7g/10分、密度:0.919g/cm<sup>3</sup>、ノバテックは登録商標):20重量%

(C)粘性付与樹脂として、水添テルペン樹脂である商品名「クリアロンP-125」(ヤスハラケミカル(株)製、GPC法による分子量:700):5重量%

【0104】なお、この成形におけるエアギャップは120mmで、ラミネート速度は100m/分とした。また、共押出熔融膜の基材面側にはオゾン処理を行った。さらに成形後12時間以内に、温度40℃、湿度10%以下の乾燥機中に24時間保管し、これをエージング処理として目的の積層フィルムを得た。

【0105】

【比較例1】実施例1において、シーラント層を構成する樹脂組成物を、以下に示す成分(A)と(B)との混合物を用いて調製した他は、実施例1と同様にして積層フィルムを得た。

【0106】(A)メタロセン触媒を用いて得られたエチレン・ブテン-1共重合体(MFR:32g/10分、密度:0.88g/cm<sup>3</sup>、ブテン含量:23重量%):80重量%

(B)低密度ポリエチレン「ノバテックLC600A」

(日本ポリケム(株)製、MFR:7g/10分、密度:0.919g/cm<sup>3</sup>):20重量%

【0107】

【実施例2】実施例1において、シーラント層を構成する樹脂組成物を、以下に示す成分(A)、(B)及び(D)の混合物を用いて調製した他は、実施例1と同様にして積層フィルムを得た。

【0108】(A)メタロセン触媒を用いて得られたエチレン・ブテン-1共重合体(MFR:32g/10分、密度:0.88g/cm<sup>3</sup>、ブテン含量:23重量%):75重量%

(B)低密度ポリエチレン「ノバテックLC600A」(日本ポリケム(株)製、MFR:7g/10分、密度:0.919g/cm<sup>3</sup>):20重量%

(D)ワックス成分として、低分子量ポリエチレンである商品名「サンワックス165」(三洋化成工業(株)製、GPC法による分子量:5000):5重量%

【0109】

【実施例3】実施例1において、シーラント層を構成する樹脂組成物を、以下に示す成分(A)、(B)、(C)及び(D)の混合物を用いて調製した他は、実施例1と同様にして積層フィルムを得た。

【0110】(A)メタロセン触媒を用いて得られたエチレン・ブテン-1共重合体(MFR:32g/10分、密度:0.88g/cm<sup>3</sup>、ブテン含量:23重量%):70重量%

(B)低密度ポリエチレン「ノバテックLC600A」(日本ポリケム(株)製、MFR:7g/10分、密度:0.919g/cm<sup>3</sup>):20重量%

(C)水添テルペン樹脂「クリアロンP-125」(ヤスハラケミカル(株)製、粘性付与樹脂):5重量%

(D)ワックス成分「サンワックス165」(三洋化成工業(株)製):5重量%

【0111】

【実施例4】実施例3において、成分(D)のワックス成分として、商品名「ユーメックス2000」(三洋化成工業(株)製、マレイン酸変性ポリエチレン(変性度5%))5重量%に変更した他は、実施例3と全く同様にして積層フィルムを得た。

【0112】

【比較例2】実施例1において、(A)成分量を55重量%、(C)成分量を25重量%に変更した他は、実施例1と全く同様にして積層フィルムを得た。

【0113】

【表1】

表1

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1	比較例2
成 分	(A)	75	75	70	70	80	55
	(B)	20	20	20	20	20	20
	(C)	5	—	5	5	—	25
	(D)	—	5	5	5	—	—
加工性	離ロール性	○	○	○	○	○	×
品 質	最高充填速度	25	25	25	25	15	20
	耐圧強度	○	○	○	○	○	△
	液 漏 れ	0	0	0	0	10	30

【0114】

【発明の効果】本発明の積層フィルムは、離ロール性が良好で加工性に優れている。また、本発明のシーラント層を用いれば、シール時に内容物がシール部に夾雑シールされても漏れのないようシールされるため、高速充填が可能で不良率が少ない。よって、特に繊維、粉体等の固形状の不溶物を含む液体、粘体等の流体を内容物とする包装材として好適に用いられる。

【図面の簡単な説明】

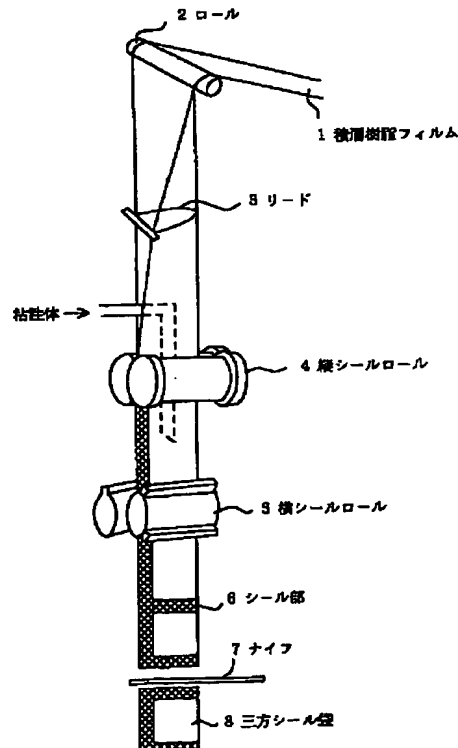
【図1】ダイロール方式の自動充填包装機を用いて三方ヒートシール袋を製造する工程を示すフローシート図で\*

\*ある。

【符号の説明】

1. 積層樹脂フィルム
2. ロール
3. リード
4. 縦シールロール
5. 横シールロール
6. シール部
7. ナイフ
8. 三方シール袋

【図1】



フロントページの続き

(72)発明者 山下 隆

三重県四日市市東邦町 1 番地 日本ポリケ  
ム株式会社四日市技術センター内

F ターム(参考) 4F100 AJ01 AJ11B AK01B AK04B

AK06 AK48 AK51G AK62B

AK63B AK65 AL05B AT00A

BA02 BA15 BA28 CB01 EC18B

GB15 JA06B JA13B JL00

JL01 JL11 YY00B

4J040 BA182 BA202 DA021 DA022

DA031 DA032 DA041 DA042

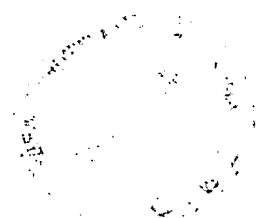
DA051 DA052 DA121 DA122

DE031 DE032 DK012 DN032

DN072 EL012 KA26 LA04

LA06 LA08 LA11 MA02 MA10

MA11 MB03 NA06 NA08



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☐ **FADED TEXT OR DRAWING**

☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**